Terrassa Areal Rogelio

Applicant
Application No.
Filing Date 10/825,048

April 15, 2004
METHOD FOR THE DE-ACIDIFICATION OF CELLUSO For

MATERIAL

CORDRAY, DENNIS R Examiner

1731 Art Unit

EXHIBIT A

PCT

ORGANIZACION MUNDIAL DE LA PROPIEDAD INTELECTUAL Oficina Internacional



SOLICITUD INTERNACIONAL PUBLICADA EN VIRTUD DEL TRATADO DE COOPERACION EN MATERIA DE PATENTES (PCT)

(51) Clasificación Internacional de Patentes 7: WO 00/08250 (11) Número de publicación internacional: **A2** D21C (43) Fecha de publicación internacional: 17 de Febrero de 2000 (17.02.00) 1) Estados designados: AE, AL, AM, AT, AU, AZ, BA, BB, BG, (21) Solicitud internacional: PCT/ES99/00242 BR, BY, CA, CH, CN, CU, CZ, DE, DK, EE, ES, FI, GB, GD, GE, GH, GM, HR, HU, ID, IL, IN, IS, JP, KE, KG, (22) Fecha de la presentación internacional: KP, KR, KZ, LC, LK, LR, LS, LT, LU, LV, MD, MG, MK, 29 de Julio de 1999 (29.07.99) MN, MW, MX, NO, NZ, PL, PT, RO, RU, SD, SE, SG, SI, SK, SL, TJ, TM, TR, TT, UA, UG, US, UZ, VN, YU, ZA, ZW, Patente ARIPO (GH, GM, KE, LS, MW, SD, SL, (30) Datos rélativos a la prioridad: SZ, UG, ZW), Patente euroasiática (AM, AZ, BY, KG, KZ, 31 de Julio de 1998 (31.07.98) ES P 9801733 MD, RU, TJ, TM), Patente europea (AT, BE, CH, CY, DE, P 9801737 31 de Julio de 1998 (31.07.98) ES DK, ES, FI, FR, GB, GR, IE, IT, LU, MC, NL, PT, SE), Patente OAPI (BF, BJ, CF, CG, CI, CM, GA, GN, GW, ML, MR, NE, SN, TD, TG). (71) Solicitante (para todos los Estados designados salvo US): UNI-VERSITAT POLITECNICA DE CATALUNYA [ES/ES]; Colom, 11, E-08222 Terrassa (ES). Publicada Sin informe de basqueda internacional, será publicada (72) Inventor; e nuevamente cuando se reciba dicho informe. (75) Inventor/solicitante (sólo US): AREAL GUERRA, Rogelio [ES/ES]; Cotom, 11, E-08222 Terrassa (ES). (74) Mandatario: CARPINTERO LOPEZ, Francisco; Herrero & Asociados, S.L., Alcalá, 35, E-28014 Madrid (ES).

- (54) Title: PRODUCT FOR DESACIDIFICATION OF CELLULOSE MATERIAL, PRODUCTION AND UTILIZATION THEREOF
- (54) Título: PRODUCTO PARA LA DESACIDIFICACION DE MATERIAL CELULOSICO, SU OBTENCION Y EMPLEO

(57) Abstract

The product is in the form of a solution and is comprised of carbonated magnesium dl-n-propylate, n-propanol and a hydrofluorocarbonated diluent (HFC) selected between 1,1,1,2-tetrafluorocthane (HFC 134a) and 1,1,1,2,3,3,3-heptafluoropropane (HFC 227). The product can be obtained through a process which comprises the preparation of a solution of di-n-propylate of magnesium carbonate into n-propanol and diluting said solution by addition of the diluent HFC. The product is appropriate for desacidification of cellulose material and preservation of objects based on cellulose material.

(57) Resumen

El producto se presenta en forma de una disolución y está compuesto por di-n-propilato de magnesio carbonatado, n-propanol, y un diluyente hidrofluorocarbonado (HFC) seleccionado entre 1,1,1,2-tetrafluorocano (HFC 134a) y 1,1,1,2,3,3,3-heptafluoro-propano (HFC 227). El producto puede obtenerse mediante un procedimiento que comprende preparar una solución de di-n-propilato de magnesio carbonatado en n-propanol y diluir dicha solución por adición del diluyente HFC. El producto es adecuado para desacidificar material celulósico y preservar objetos a base de material celulósico.

5

10

15

20

30

35

magnesio metal utilizado en cualquiera de los Procedimientos A y B puede encontrarse en forma de cinta, en cuyo caso, necesita una preparación adecuada (véase el Ejemplo 1.2).

Alternativamente, la suspensión de di-n-propilato de n-propanol puede prepararse por magnesio procedimiento (Procedimiento C) que no requiere el empleo de cinta de magnesio sino de magnesio en forma de polvo, con una granulometría de 50 a 150 µm. Este Procedimiento C comprende, por tanto, (i) hacer reaccionar magnesio en forma de polyo con una granulometría comprendida entre 50 y 150 μm con n-propanol anhidro en presencia de yodo, que actúa como catalizador, calentando suavemente hasta que comienza el desprendimiento de hidrógeno, y, a partir de ese momento, como la reacción es fuertemente exotérmica, refrigerar la mezcla de reacción hasta temperatura de ebullición, con el fin de controlar la velocidad de la reacción a ebullición suave hasta que cesa el desprendimiento de hidrógeno y desaparecen las últimas partículas de magnesio, obteniéndose de esta manera una suspensión de di-n-propilato de magnesio en npropanol.

El uso de magnesio en forma de polvo con la granulometría indicada (50-150 µm) hace que la reacción del magnesio con el n-propanol en presencia de yodo sea exotérmica, con lo que se debe enfriar el medio de reacción en lugar de aportar energía externa adicional, y permite, además, acortar el tiempo de reacción ltípicamente, el tiempo total de reacción para la obtención del di-n-propilato de magnesio es de 4-5 horasl.

El di-n-propilato de magnesio carbonatado puede utilizarse en la elaboración de un producto, en forma de disolución, adecuado para la desacidificación de material celulósico junto con n-propanol, y un diluyente seleccionado entre el HFC 134a y el HFC 227.

En el sentido utilizado en esta descripción, el

17

proporciones análogas.

EJEMPLO 2

Preparación de di-n-propilato de magnesio carbonatado

5

10

14

20

25

30

35

2.1 <u>Preparación de di-n-propilato de magnesio</u> (Procedimiento C)

En un matraz de fondo redondo de 5 l de capacidad, provisto de un refrigerante de reflujo protegido con un tubo de cloruro cálcico anhidro, se colocan 3.750 ml de n-propanol anhidro (3 kg, 50 moles) preparado según el procedimiento descrito en el Ejemplo 1.1, continuación, se añaden 146 g (6 moles) de magnesio metal en polvo con una granulometría comprendida entre 50 y 100 им у 7,5 g de yodo como catalizador. A continuación, la mezcla de reacción se calienta suavemente hasta que se inicia el desprendimiento de hidrógeno y, a partir de ese momento, como la reacción es fuertemente exotérmica, se refrigera el medio de reacción con el fin de controlar la velocidad de la reacción a ebullición suave, durante 6 horas, hasta que cesa el desprendimiento de hidrógeno y desaparecen las últimas partículas de magnesio. Se obtiene una suspensión en n-propanol del di-n-propilato de magnesio, sólido de color gris claro. Se deja enfriar para proceder al siguiente paso de la reacción. Se obtiene una cantidad de producto de 770-800 q, con rendimientos entre 90-92%.

2.2 <u>Preparación de di-n-propilato de magnesio</u> <u>carbonatado</u>

A través de la suspensión de di-n-propilato de magnesio en n-propanol obtenida en el Ejemplo 2.1, se hace pasar una corriente de dióxido de carbono completamente anhidro después de pasar por dos torres de secado rellenas de anhidrita. La reacción es exotérmica, alcanzándose temperaturas de hasta 45°C. El compuesto sólido de partida [di-n-propilato de magnesio] va